

日 本 国 特 許 庁

22.01.01

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

JP00/9363

REC'D 09 MAR 2001

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 1月14日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-005502

出 願 人

Applicant(s):

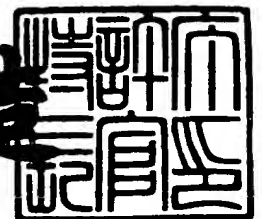
松下電器産業株式会社

**PRIORITY
DOCUMENT**
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2001年 2月23日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3009545

【書類名】 特許願

【整理番号】 2033720001

【提出日】 平成12年 1月14日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/06

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 吉田 豊

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 富澤 猛

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 麻生 智倫

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 鶴飼 邦弘

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 前西 晃

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 田口 清

【特許出願人】

【識別番号】 000005821

【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100097445

【弁理士】

【氏名又は名称】 岩橋 文雄

【選任した代理人】

【識別番号】 100103355

【弁理士】

【氏名又は名称】 坂口 智康

【選任した代理人】

【識別番号】 100109667

【弁理士】

【氏名又は名称】 内藤 浩樹

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011305

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9809938

【書類名】 明細書

【発明の名称】 水素発生装置とその運転方法およびこれを用いた燃料電池システム

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 原料供給部と、水供給部と、空気供給部と、前記原料と水とを反応させる改質触媒体を具備した改質部と、一酸化炭素と水とを反応させる変成触媒体を具備した変成部と、一酸化炭素を酸化する浄化触媒体を具備した浄化部と、前記浄化部を通過した生成ガスを排出する生成ガス排出部と、前記原料供給部と前記改質部と前記変成部と前記浄化部と前記生成ガス排出部とを連通するガス通気経路とを構成要素とする水素生成装置において、前記改質部、前記変成部、前記浄化部、前記生成ガス排出部または前記ガス通気経路の少なくとも一カ所に凝縮水排出口を設けたことを特徴とする水素生成装置。

【請求項 2】 凝縮水排出口に開閉弁を設けたことを特徴とする請求項 1 記載の水素発生装置。

【請求項 3】 起動時の一定時間、凝縮水排出口の開閉弁の開動作を行うことを特徴とする請求項 2 記載の水素発生装置の運転方法。

【請求項 4】 起動前に、不活性ガス注入によるバージ運転始動と凝縮水排出口の開閉弁の開動作とを同期させることを特徴とする請求項 2 または 3 記載の水素発生装置の運転方法。

【請求項 5】 請求項 1 または 2 記載の水素発生装置が生成する水素ガスと、酸化剤ガスとを燃料とする高分子電解質型燃料電池を用いた燃料電池システムであって、前記高分子電解質型燃料電池が排出する排ガスから水を回収する水回収部を設け、前記水素発生装置に設けた凝縮水排出口から排出される排出水を前記水回収部に導入することを特徴とする燃料電池システム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、天然ガス、LPG、ガソリン、ナフサ、灯油、メタノール等炭化水素系物質と水と空気とを原料として、燃料電池等の水素利用機器に供給するため

の水素を発生する装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

化石燃料に替わるエネルギー源の有力候補の一つとして水素が注目されているが、その有効利用のためには水素パイプライン等、社会インフラの整備が必要とされている。その一つの方法として、天然ガス、その他化石燃料、アルコール等現状既に構築されている運送、搬送等のインフラを利用し、水素を必要とする場所でそれら燃料を改質して水素を発生させる方法が検討されている。

【0003】

例えば、中小規模でのオンサイト発電装置として、燃料電池のための天然ガス（都市ガス）改質技術、自動車の動力源用の燃料電池のためのメタノール改質技術等が、様々な形で提案されている。それらの原料を改質して水素を発生させるためには高温での触媒反応が用いられ、代表的な方法として水蒸気改質方法、部分酸化を併用したオートサーマル方法がある。

【0004】

しかし、改質反応は高温で進行するため生成物としての水素とともに、その反応平衡から副生成物として一酸化炭素（以下COと記述）、二酸化炭素（以下CO₂と記述）が生成する。生成した水素を燃料電池に適用するとき、特に高分子電解質型燃料電池では、副生成物であるCOは燃料電池の電極を被毒して、その性能を著しく劣化させるため、極力低濃度にしておく必要がある。そのため、改質反応部の下流側に、変成反応部、CO浄化部を付加して、CO濃度を数十ppmにまで低下させる方法を採用するのが一般的である。この一連の反応で、改質部で生成される10%程度の濃度のCOは、変成部で1%前後まで低減され、さらにCO浄化部で数十ppmまで低減され、燃料電池に供給される。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

燃料電池、特に高分子電解質型燃料電池に水素を供給するための水素発生器は、従来例に示したように、改質反応、変成反応、CO浄化反応を経由するのが一般的である。各反応における一般的な触媒温度は、改質部が650～750℃、

変性部が 2 0 0 ~ 3 5 0 ℃、浄化部が 1 0 0 ~ 2 0 0 ℃であり、特に浄化部はその温度領域に達しないと C O を数十 p p m まで低減することができないので、燃料電池につなぐことができない。

【 0 0 0 6 】

従って燃料電池の起動時間は、浄化部の触媒温度の立ち上がり時間で律速される。変性部は、改質反応の終了後の廃熱で触媒が活性温度に達し反応を開始する。また C O 浄化部は、変性反応の終了後の廃熱で活性温度に達し反応を開始する。しかし、この構成では運転操作方法により、水素ガス生成の際の凝縮水が経路内にたまり、触媒温度の立ち上がり時間を遅らせることがある。

【 0 0 0 7 】

たとえば、運転開始後、短時間で運転を停止した時、変性部及び浄化部の温度が十分に上昇していないとき、改質部で改質されたガス（以降、改質ガスとよぶ）、及びその後、変性部で変性されたガス（以降、変性ガスとよぶ）の水分が凝縮し、凝縮水となって浄化部下部にたまる。その状態で再運転したとき、たまった凝縮水を蒸発させるために熱が必要となるため、浄化触媒を活性温度にまで昇温させる時間が長くなる。

【 0 0 0 8 】

本発明はそれらの点に鑑みて成されたものであり、浄化部の触媒活性温度に到達するまでの時間を短縮することを目的としたものである。

【 0 0 0 9 】

【課題を解決するための手段】

本発明の水素生成装置は上記課題を解決するために、原料供給部と、水供給部と、空気供給部と、前記原料と水とを反応させる改質触媒体を具備した改質部と、一酸化炭素と水とを反応させる変成触媒体を具備した変成部と、一酸化炭素を酸化する浄化触媒体を具備した浄化部と、前記浄化部を通過した生成ガスを排出する生成ガス排出部と、前記原料供給部と前記改質部と前記変成部と前記浄化部と前記生成ガス排出部とを連通するガス通気経路とを構成要素とする水素生成装置において、前記改質部、前記変性部、前記浄化部、前記生成ガス排出部または前記ガス通気経路の少なくとも一カ所に凝縮水排出口を設けたことを特徴とする

【0010】

このとき、凝縮水排出口に開閉弁を設けたことが有効である。

【0011】

また、起動時の一定時間、凝縮水排出口の開閉弁の開動作を行うことが望ましい。

【0012】

また、起動前に、不活性ガス注入によるパージ運転始動と凝縮水排出口の開閉弁の開動作とを同期させることが有効である。

【0013】

また本発明は、水素発生装置が生成する水素ガスと、酸化剤ガスとを燃料とする高分子電解質型燃料電池を用いた燃料電池システムであって、前記高分子電解質型燃料電池が排出する排ガスから水を回収する水回収部を設け、前記水素発生装置に設けた凝縮水排出口から排出される排出水を前記水回収部に導入することを特徴とする。これにより、燃料電池からの排出水を外部に垂れ流すことなく回収するものである。このとき、水回収部よりも上部に水素発生装置の凝縮水排出口を設けることにより、重力で水の流れが生じ、水回収部への水の回収を容易にすることができる。

【0014】

【発明の実施の形態】

（実施の形態1）

本発明の第1の実施の形態を図1とともに説明する。

【0015】

図1に、本実施形態の水素発生装置の概略構成を示した。1は内部に改質触媒としてルテニウムを用い、これをアルミナに担持したものを充填した改質部、2は変成触媒として白金を CeO_2 に担持したものを充填した変成部、3はCO浄化触媒として白金-ルテニウムの混合物をアルミナに担持してものを充填したCO浄化部である。触媒を担持する担体は形状として粒状、ペレット状、ハニカム状等から、材質はセラミック、耐熱性金属等から適宜選択できるものである。4

は燃料供給部であり、天然ガス（都市ガス）、L P G等の気体状炭化水素燃料あるいはガソリン、灯油、メタノール等の液体状炭化水素系燃料が用いられる。5は水供給部、6は水蒸気発生部であり、7は改質部への水蒸気供給部A、8は変性部への水蒸気供給部Bである。9は加熱部であり、改質部1の触媒と水蒸気発生部6を加熱する。10は不活性ガスによるパージガス供給部であり、起動前に水素生成経路内の可燃性ガスのパージを行う。11は浄化部3への浄化用空気供給部、12浄化部下部に設けた凝縮水排出口、13は生成水素リッチガス出口である。

【0016】

起動時の動作を以下に説明する。加熱部9により、改質部1と水蒸気発生部6を加熱する。改質部1を所定レベルまで加熱後、燃料供給部4から燃料を改質部1へ、水供給部5から水を水蒸気発生部6へとそれぞれ供給を開始させる。水蒸気発生部6で発生した水蒸気のうち一部は水蒸気供給部7へ、一部は水蒸気供給部8へ供給される。水蒸気供給部7より改質部1へ供給された水蒸気と燃料供給部4から供給された燃料とが混合し、改質触媒部へ達し改質反応が開始される。改質ガスは水蒸気供給部8より供給された水蒸気と混合され、変性反応を行うために変性部に達する。変性ガスは浄化用空気供給部11より供給された空気と混合され、浄化部3へ達し浄化され、水素リッチガスとなって生成水素リッチガス出口13より排出される。

【0017】

以上の構成では、たとえば、運転開始後短時間で運転を停止した時では、変性部及び浄化部の温度が十分に上昇していないので、改質ガス及び変性ガスの水分が凝縮し、凝縮水となってたとえば浄化部下部にたまる。その状態で再運転すると、たまった凝縮水を蒸発させるために熱が必要となるため、浄化触媒を活性温度にまで昇温させる時間が長くなる。それを防ぐために本実施の形態では、凝縮水排出口12を設け、凝縮水を排出させる。

【0018】

（実施の形態2）

本発明の第2の実施の形態を図2とともに説明する。

【 0 0 1 9 】

図 2 に、本実施形態の水素発生装置の概略構成を示した。本実施の形態では、第 1 の実施形態にプラスして凝縮水排出口 1 2 に開閉弁を設け、開閉動作を容易に行える構成とした。

【 0 0 2 0 】

(実施の形態 3)

本発明の第 3 の実施形態では、第 2 の実施形態において、運転開始時及び再運転開始時の一定時間、開閉弁の開動作を行う。一定時間の規定は、開動作開始からの時間を測定して規定する方法、または凝縮水排出口 1 2 近傍部の凝縮水有無の判断をするに適切な位置の温度情報をもとに規定する方法とがある。これにより、凝縮水がなくなったにもかかわらず開閉弁が開き放しになり生成途中の水素リッチガスが排出してしまうことを防ぐことができる。

【 0 0 2 1 】

(実施の形態 4)

本発明の第 4 の実施形態では、第 2 の実施例において、起動前に、不活性ガス注入によるパージ運転始動と凝縮水排出口の開閉弁の開動作とを同期させる。すなわちパージ運転開始とともに開閉弁を開とし、パージ運転終了とともに開閉弁を閉にする。これにより、運転開始及び再運転開始前に確実に、パージ運転による高圧力で経路内の凝縮水を凝縮水排出口へ押し出し排出することができる。

【 0 0 2 2 】

(実施の形態 5)

本発明の第 5 の実施形態を図 3 で説明する。1 4 は高分子電解質型燃料電池、1 5 は酸化剤ガス供給部、1 6 は凝縮水回収タンク、1 7 は凝縮器である。加熱部 9 により、改質部 1 と水蒸気発生部 6 を加熱する。改質部 1 を所定レベルまで加熱後、燃料供給部 4 から燃料を改質部 1 へ、水供給部 5 から水を水蒸気発生部 6 へとそれぞれ供給を開始させる。水蒸気発生部 6 で発生した水蒸気のうち一部は水蒸気供給部 7 へ、一部は水蒸気供給部 8 へ供給される。水蒸気供給部 7 より改質部 1 へ供給された水蒸気と燃料供給部 4 から供給された燃料とが混合し、改質触媒部へ達し改質反応される。改質ガスは水蒸気供給部 8 より供給された水蒸

気と混合され、変成反応を行うために変成部に達する。

【 0 0 2 3 】

変成ガスは浄化空気供給部 1 1 より供給された空気と混合され、浄化部 3 へ達し浄化され、水素リッチガスとなって生成水素リッチガス出口 1 3 より排出される。生成水素リッチガスと酸化剤ガス供給部 1 5 より供給された酸化剤ガスとを用いて、高分子電解質型燃料電池 1 4 で発電が行われ、高分子電解質型燃料電池 1 4 から排出されるガスは凝縮器 1 7 により水分が凝縮され、凝縮水回収部 1 6 に回収される。この構成において、凝縮水排出口 1 2 から排出される凝縮水を凝縮水回収タンク 1 6 に導入する。これにより排出水を外部に垂れ流すことなく回収することができる。このとき、凝縮水回収部 1 6 よりも凝縮水排出口 1 2 のほうが上部になる構成とする。これにより、重力で水の流れが生じ、凝縮水の回収がしやすなる。

【 0 0 2 4 】

【発明の効果】

本発明による効果を以下に示す。

【 0 0 2 5 】

1. 改質部、変成部、浄化部、生成ガス排出部または前記ガス通気経路の少なくとも一カ所中に凝縮水排出口を設けたことにより、運転開始後短時間で運転を停止しその後再運転を行う時等に経路中にたまる凝縮水を抜くことができ、浄化部の触媒活性温度に到達するまでの時間すなわち燃料電池の起動時間を短縮できる。

【 0 0 2 6 】

2. 凝縮水排出口部に開閉弁を設けることにより、開閉動作を容易に行うことができる。

【 0 0 2 7 】

3. 開閉弁の開動作を運転開始時及び再運転開始時の一定時間と規定することにより、凝縮水がなくなったにもかかわらず、開閉弁が開き放しになり生成途中のガスが排出してしまうことを防ぐことができる。

【 0 0 2 8 】

4. 開閉弁の動作は運転開始前及び再運転開始前に行う不活性ガスによる生成ガスの生成経路内のパージ運転に同期させることにより、運転開始及び再運転開始前に確実に、パージ運転による高圧力で経路内の凝縮水を凝縮水排出口へ押し出し排出することができる。

【 0 0 2 9 】

5. 高分子電解質型燃料電池から排出されるガスから回収した凝縮水回収部に、凝縮水排出口から排出される排出水を導入することにより排出水を外部に垂れ流すことなく回収することができる。このとき、凝縮水回収部よりも凝縮水排出口のほうを上部に構成することにより、重力で水の流れが生じ、凝縮水回収部へ回収しやすくなる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の第 1 の実施形態である水素発生装置の構成を示した図

【図 2】

本発明の第 2 の実施形態である水素発生装置の構成を示した図

【図 3】

本発明の第 5 の実施形態である燃料電池システムの構成を示した図

【符号の説明】

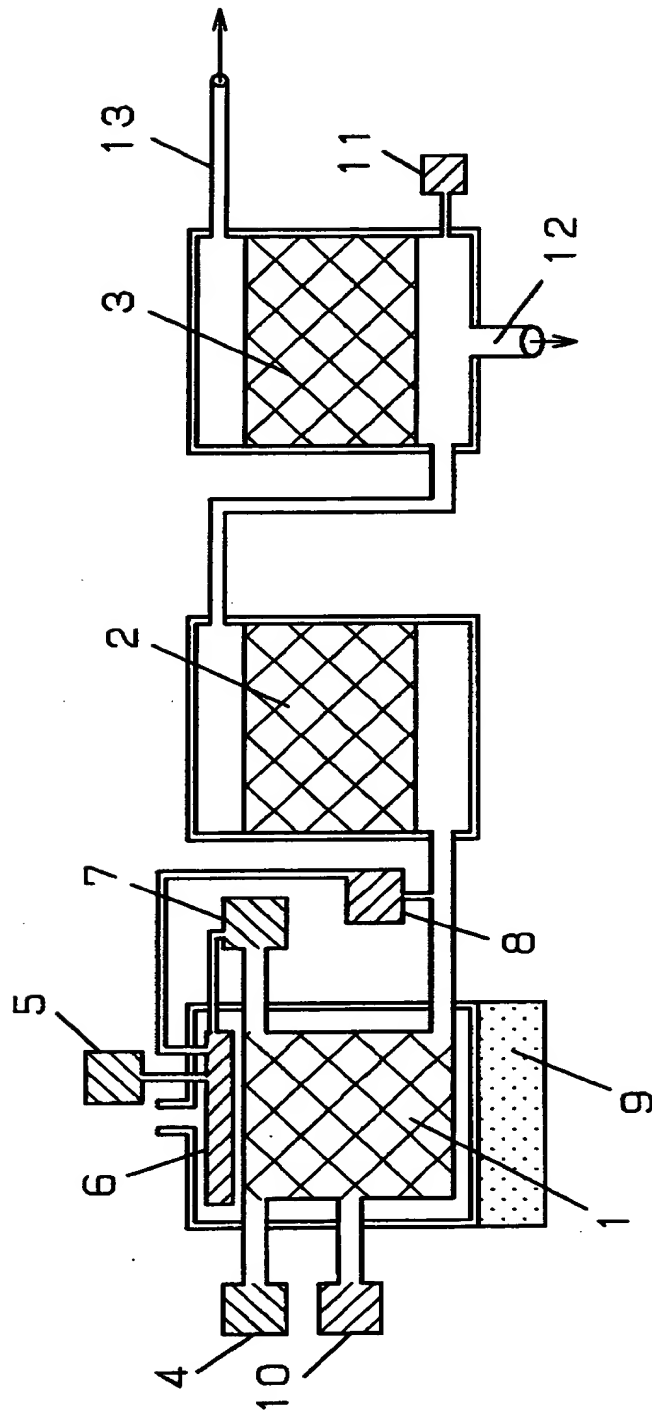
- 1 改質部
- 2 変成部
- 3 CO 浄化部
- 4 燃料供給部
- 5 水供給部
- 6 水蒸気発生部
- 7 水蒸気供給部 A
- 8 水蒸気供給部 B
- 9 加熱部
- 10 パージガス供給部
- 11 浄化空気供給部

- 1 2 凝縮水排出口
- 1 3 水素リッチガス生成出口
- 1 4 高分子電解質型燃料電池
- 1 5 酸化剤ガス供給部
- 1 6 凝縮水回収部
- 1 7 凝縮器

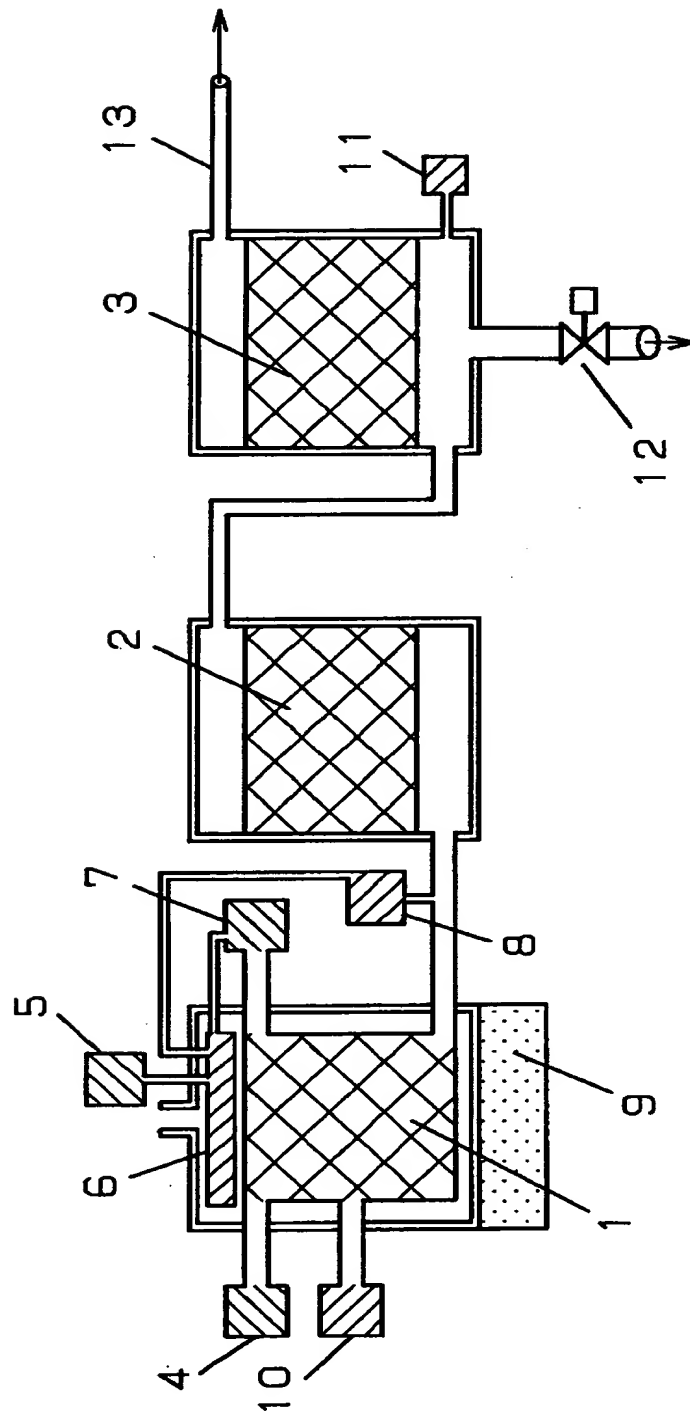
【書類名】

図面

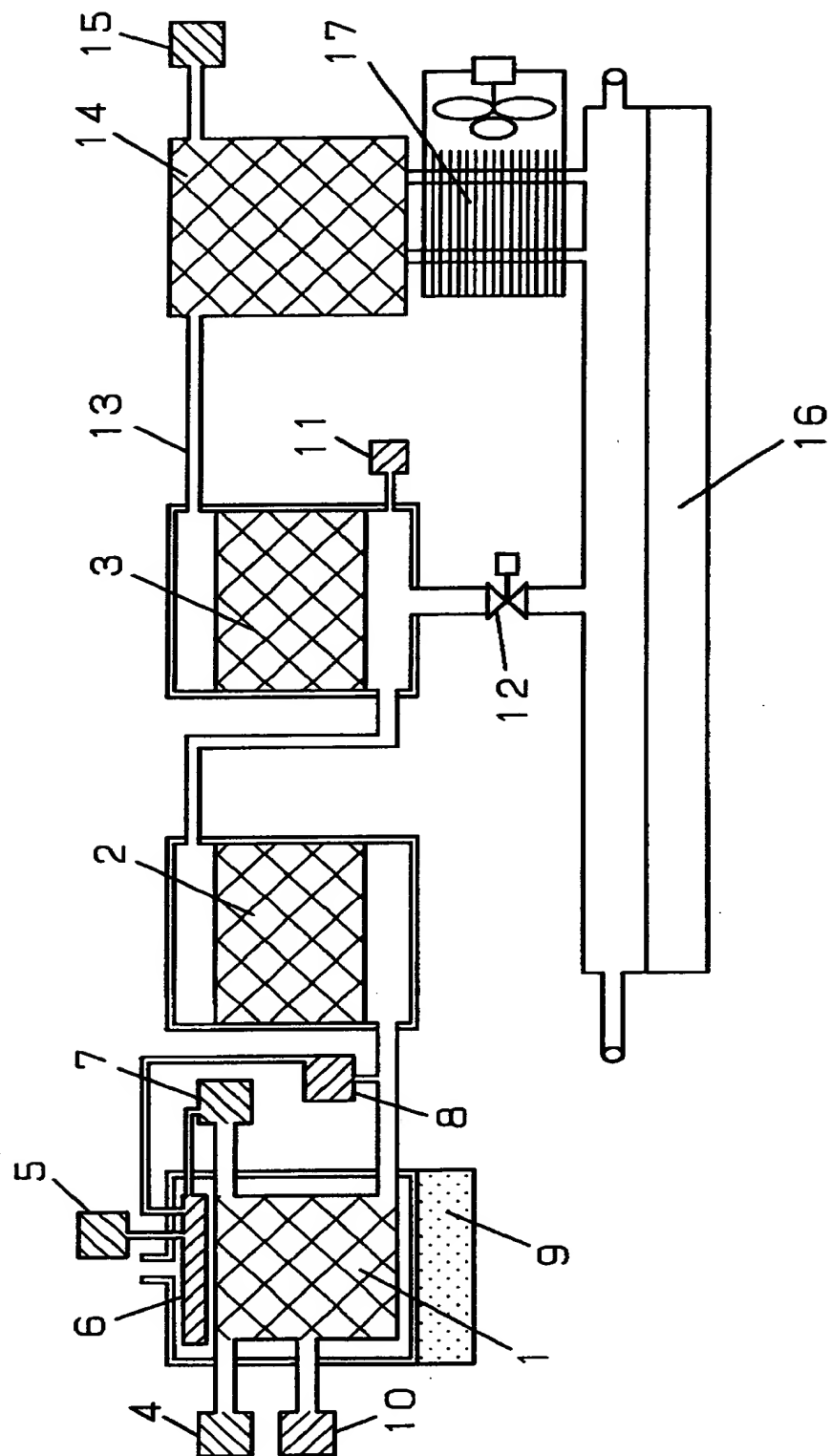
【図 1】



【図 2】



【図3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 改質部、変成部、浄化部を有する水素発生装置装置において、運転開始後短時間で運転を停止しその後再運転を行う時等に、経路中に凝縮水がたまり、たまった凝縮水の蒸発に熱が必要となるため、浄化部の触媒が活性温度に到達するまでの時間が長くなる。

【解決手段】 生成ガスの経路中に凝縮水排出口を設け、たまった凝縮水を排出させる。また、開閉弁の開動作を起動時の一定時間と規定し、生成途中の水素ガスの排出を防ぐ。さらに、開閉弁の動作を起動前に行う不活性ガスによる生成ガス経路内のパージ運転に同期させ、起動前に確実にパージ運転による高圧力で経路内の凝縮水を凝縮水排出口へ押し出し排出させる。そして、高分子電解質型燃料電池の排出ガスから回収した凝縮水回収部に、凝縮水排出口から排出される排出水を導入し、排出水を外部に垂れ流すことなく回収する。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 5 8 2 1]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 8 日
[変更理由]	新規登録
住 所	大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地
氏 名	松下電器産業株式会社

